

**Espacenet****Bibliographic data: JP 2000273750 (A)****BIODEGRADABLE FILAMENT NONWOVEN CLOTH AND ITS PRODUCTION**

**Publication date:** 2000-10-03  
**Inventor(s):** MATSUNAGA MAMIKO; MATSUNAGA ATSUSHI; NAGAOKA KOICHI +  
**Applicant(s):** UNITIKA LTD +  
**Classification:**  
    - International: D01F6/62; D04H3/00; D04H3/10; D04H3/14; (IPC1-7); D01F6/62; D04H3/00; D04H3/10; D04H3/14  
    - European:  
**Application number:** JP19990174773 19990622  
**Priority number (s):** JP19990174773 19990622; JP19990009965 19990119

**Abstract of JP 2000273750 (A)**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a poly(lactic acid-based filament nonwoven cloth having bio-decomposability in a natural environment, and having a practical mechanical strength and excellent flexibility. **SOLUTION:** This nonwoven cloth is obtained from a poly(lactic acid-based polymer having >=100 deg.C melting point and selected from a group of a poly(D-lactic acid), poly(L-lactic acid), a copolymer of D-lactic acid and L-lactic acid, a copolymer of D-lactic acid and hydroxycarboxylic acid, a copolymer of L-lactic acid and hydroxycarboxylic acid and a copolymer of D-lactic acid, L-lactic acid and hydroxycarboxylic acid, or a blend of the polymers having >=100 deg.C melting point. The poly(lactic acid-based polymer has 10×10<sup>3</sup>-25×10<sup>3</sup> birefringence, 12-30 wt.% crystallinity and <=80 Ångström crystallite size in a fiber axis direction. The nonwoven cloth has <=15% boiling water shrinkage.

Last updated: 26.04.2011 Worldwide Database 5.7.22; 93p

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別割号	F I	テ-マ3-ト <sup>8</sup> (参考)
D 0 4 H	3/00	D 0 4 H	3/00
	3/10		3/10
	3/14		3/14
// D 0 1 F	6/62	3 0 5	D 0 1 F 6/62 3 0 5 Z

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 16 頁)

(21)出願番号	特願平11-174773
(22)出願日	平成11年6月22日(1999.6.22)
(31)優先権主張番号	特願平11-9965
(32)優先日	平成11年1月19日(1999.1.19)
(33)優先権主張国	日本 (JP)

(71)出願人	000004503 ユニチカ株式会社 兵庫県尼崎市東本町1丁目50番地
(72)発明者	松永 雅美子 愛知県岡崎市日名北町4-1 ユニチカ株式会社岡崎工場内
(73)発明者	松永 雅 愛知県岡崎市日名北町4-1 ユニチカ株式会社岡崎工場内
(74)代理人	100068087 弁理士 森本 義弘

最終頁に統ぐ

## (54)【発明の名称】 生分解性長繊維不織布およびその製造方法

## (57)【要約】

【課題】 自然環境下において微生物などによる分解性を有し、しかも実用に供し得る機械的強度と優れた柔軟性とを具備したポリ乳酸系長繊維不織布を提供する。

【解決手段】 ポリ乳酸系重合体が、ポリ(D-乳酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が100°C以上の重合体、あるいはこれら融点が100°C以上の重合体のブレンド体である。ポリ乳酸系重合体は、複屈折率が $1.0 \times 10^{-3}$ ～ $2.5 \times 10^{-3}$ であり、結晶化度が1.2～3.0重量%であり、繊維軸方向の結晶サイズが80Å以下である。この不織布は、沸水収縮率が1.5%以下である。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリ乳酸系重合体からなる単相断面の長纖維にて構成された不織布であって、前記ポリ乳酸系重合体が、ポリ( D-乳酸)と、ポリ( L-乳酸)と、D-乳酸と L-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸と L-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が 100°C 以上の重合体、あるいはこれら融点が 100°C 以上の重合体のブレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、複屈折率が  $1.0 \times 10^{-3}$  ～  $2.5 \times 10^{-3}$  であり、結晶化度が 12 ～ 30 重量% であり、纖維軸方向の結晶サイズが 80 Å 以下であり、前記不織布は、沸水収縮率が 15% 以下であることを特徴とする生分解性長纖維不織布。

【請求項 2】 ポリ乳酸系重合体からなる異形断面または複合断面の長纖維にて構成された不織布であって、前記ポリ乳酸系重合体が、ポリ( D-乳酸)と、ポリ( L-乳酸)と、D-乳酸と L-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸と L-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が 100°C 以上の重合体、あるいはこれら融点が 100°C 以上の重合体のブレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、結晶化度が 12 ～ 30 重量% であり、纖維軸方向の結晶サイズが 80 Å 以下であり、

前記不織布は、沸水収縮率が 15% 以下であることを特徴とする生分解性長纖維不織布。

【請求項 3】 不織布を構成する長纖維同士が部分的に熱着されていることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の生分解性長纖維不織布。

【請求項 4】 あらかじめ形成された部分的な仮熱着点における長纖維同士が三次元的交絡処理によって一部剥離してなる点状融着部分を有し、かつ前記点状融着部分以外の非融着部分における長纖維が相互に三次元的に交絡して全体として一体化されていることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の生分解性長纖維不織布。

【請求項 5】 一旦形成された部分的な仮熱着点における長纖維同士が三次元的交絡処理によって完全に剥離して相互に三次元的に交絡して全体として一体化されていることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の生分解性長纖維不織布。

【請求項 6】 長纖維にて構成される不織布の少なくとも片面が、全面的に熱着されていることを特徴とする請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項記載の生分解性長纖維不織布。

【請求項 7】 目付  $100 \text{ g/m}^2$  に換算した時の不織布の引張強力が  $10 \text{ kg}/5 \text{ cm}$  幅以上であることを特徴とする請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の生分解性長纖維不織布。

【請求項 8】 ポリ乳酸系重合体からなる長纖維にて構成された不織布の製造方法であって、ASTM-D-1 238 に準じて温度  $210^{\circ}\text{C}$  で測定したメルトフロー率が  $1.0 \sim 100 \text{ g}/10 \text{ 分}$  であるところの、ポリ( D-乳酸)と、ポリ( L-乳酸)と、D-乳酸と L-乳酸との共重合体と、D-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が 100°C 以上の重合体、あるいはこれら融点が 100°C 以上の重合体のブレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、複屈折率が  $1.0 \times 10^{-3}$  ～  $2.5 \times 10^{-3}$  であり、結晶化度が 12 ～ 30 重量% であり、纖維軸方向の結晶サイズが 80 Å 以下であり、

前記不織布は、沸水収縮率が 15% 以下であることを特徴とする生分解性長纖維不織布。

【請求項 9】 ウエブを重合体あるいはブレンド体の融点よりも低い温度で部分的に熱着することを特徴とする請求項 8 記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項 10】 重合体あるいはブレンド体からなる二種以上の成分を用いて纖維横断面が複合断面となる口金により溶融糸紡し、前記二種以上の成分のうち最も融点が低い成分の融点よりも低い温度で部分的に熱着することを特徴とする請求項 8 記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項 11】 ウエブに部分的な熱着処理を施すことによって仮熱着点を形成し、次いで、三次元的交絡処理を施すことにより前記仮熱着点における長纖維同士の少なくとも一部を剥離させて、剥離状態における長纖維を相互に三次元的に交絡させることにより全体として一体化することを特徴とする請求項 8 から 10 までのいずれか 1 項記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項 12】 仮熱着点を形成するための部分的な熱着処理を、エンボスロールによってウエブを押圧することによって行い、そのときに長纖維の構成成分のうち最も低い融点を有する成分の融点を  $T_m^{\circ}\text{C}$  として ( $T_m - 80$ ) °C ～ ( $T_m - 50$ ) °C の加工温度で、かつロールの線圧を  $5 \sim 30 \text{ kg}/\text{cm}$  として行うことを特徴とする請求項 1 から 1 記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項 13】 部分的に熱着処理を施した不織布の少なくとも片面を全面熱着することを特徴とする請求項 8 から 10 までのいずれか 1 項記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項 14】 あらかじめ部分的な仮熱着処理および三次元的交絡処理を施した不織布の少なくとも片面を全面的に熱着することを特徴とする請求項 1 または

## 1.2記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

【請求項1 5】 全面熱着圧のための処理を、重合体あるいはプレンド体における最も融点が低い成分の融点をTm°Cとしたときに(Tm-10)°C以下の温度で、ロールの線圧を0.01kg/cm以上として行うことを特徴とする請求項1 3または1 4記載の生分解性長纖維不織布の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、自然環境下において微生物などによる分解性を有する生分解性長纖維不織布およびその製造方法に関し、特にポリ乳酸系重合体を用いて特定条件により得られる生分解性長纖維不織布およびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来から、微生物などによる分解性を有する不織布としては、例えば天然纖維又は再生纖維由来の分解性不織布として、コットン、麻、羊毛、レーヨン、キチン、アルギン酸等からなる不織布が知られている。しかし、これらの分解性不織布は、一般的に親水性かつ吸水性であることから、例えば使い捨ておむつのトップシートのように吸水性かつ低吸水性を要し温潤時のドライ感が要求される用途には適さない。また、これらの不織布は、温潤環境下での強力や寸法安定性の低下が著しく、一般産業用資材用途としての展開には限界があった。さらに、これらの不織布は、非熱可塑性であることから、熱成形性を有さず加工性に劣るものであった。

【0003】 そこで、近年、熱可塑性かつ疎水性の微生物分解性重合体を用いた溶融紡糸法により得られる微生物分解性纖維や微生物分解性不織布に関する研究開発が盛んとなっている。特に、脂肪族ポリエチレンと総称される一群のポリマーは微生物分解性能を有することから、とりわけ注目されている。このポリマーとしては、具体的には、微生物分解性ポリエチレンに代表されるポリ- $\beta$ -ヒドロキシアルカノエートや、ポリカプロラクトンに代表されるポリ- $\omega$ -ヒドロキシアルカノエートや、例えばポリブチレンサクシネットのような、グリコールとジカルボン酸との重合体からなるポリアルキレンジカルボキシレート、またはこれらの共重合体などが挙げられる。そのなかで、ポリ-L-乳酸に代表されるようなポリ- $\alpha$ -オキシ酸も、近年、高重合度のポリマーを効率的に製造しうる新しい重合法が開発されおり、その纖維化ならびに不織布化が種々検討されている。特に、ポリ乳酸は前記の脂肪族ポリエチレンのなかで融点が比較的の高く、その不織布は耐熱性を要する用途において有用であるため、ポリ乳酸不織布の実用化が期待されている。

【0004】 これまでにポリ乳酸を用いた不織布としては、特開平7-126970号公報に、ポリ乳酸を主成分とする短纖維不織布が示されている。また、ポリ乳酸

短纖維不織布の製造に有用なポリ乳酸製の短纖維が、特開平6-212511号公報に開示されている。しかし、このような短纖維不織布は、纖維の溶融紡糸から不織布化までに多数の製造工程を要することから、製造コストの低減に限界がある。

【0005】 一方、溶融押出法により糸条を押出してスクリーン上にエップを堆積させる、いわゆるスパンボンド法により、ポリ乳酸を用いて製造する長纖維不織布が、特開平7-48769号公報、特開平6-264343号公報、International Nonwovens Journal、Vol. 7、No. 2、pp 69 (1995)、ヨーロッパ特許出願公開第0637641号に示唆されている。

【0006】 しかし、特開平7-48769号公報においては、ポリ乳酸重合体からスパンボンド法により不織布を作ることが可能である旨が示唆されているのみで、具体的な製造方法や得られる不織布の物性については何ら記載されていない。特開平6-264343号公報は、微生物分解性農業用纖維集合体に関するものであるが、最も重要な製造条件である紡出糸条の引取速度その他の詳細な記載がなく、得られた不織布の物性についても不明である。International Nonwovens Journal、Vol. 7、No. 2、pp 69 (1995)では、板状の硬くてもらいポリ乳酸スパンボンド不織布しか得られていない。ヨーロッパ特許出願公開第0637641号では、柔軟にしてしかも機械的強度に優れたポリ乳酸スパンボンド不織布は得られていない。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】 そこで本発明は、自然環境下において微生物などによる分解性を有し、しかも実用に供し得る機械的強度と優れた柔軟性とを具備したポリ乳酸系長纖維不織布を得るという課題を解決することを目的とする。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 この目的を達成するため本発明は、(1) ポリ乳酸系重合体からなる単相断面の長纖維にて構成された不織布であって、前記ポリ乳酸系重合体が、ポリ(D-乳酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が100°C以上の重合体、あるいはこれら融点が100°C以上の重合体のプレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、複層折率が1.0×10<sup>-3</sup>～2.5×10<sup>-3</sup>であり、結晶化度が1.2～3.0重量%であり、纖維軸方向の結晶サイズが80Å以下であり、前記不織布は、沸水収縮率が1.5%以下であることを特徴とする生分解性長纖維不織布と、(2) ポリ乳酸系重合体からなる異形断面または複合断面の長纖維にて構成された不織布であって、前記ポリ乳酸系重合体が、ポリ(D-乳

酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が100°C以上の重合体、あるいはこれら融点が100°C以上の重合体のブレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、結晶化度が12~30重量%であり、纖維軸方向の結晶サイズが80Å以下であり、前記不織布は、沸水吸縮率が15%以下であることを特徴とする生分解性長纖維不織布と、(3)ポリ乳酸系重合体からなる長纖維にて構成された不織布の製造方法であって、ASTM-D-1238に準じて温度210°Cで測定したマルトフローレート(以下、「MFR」と称する)が1.0~1.00g/10分であるところの、ポリ(D-乳酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が100°C以上の重合体、あるいはこれら融点が100°C以上の重合体のブレンド体を、これら重合体あるいはブレンド体の融点をTm°Cとしたときに、(Tm+20)°C~(Tm+80)°Cの温度で溶融して口金から吐出させ、この吐出糸条を吸引装置にて3000~6500m/minの引取速度で牽引細化させた後に、移動式捕集面上に開纖させながら堆積させてウエブを形成し、このウエブを熟処理することを特徴とする生分解性長纖維不織布の製造方法と、を要旨とするものである。

【0009】このため本発明によると、自然環境下において微生物などによる分解性を有し、しかも実用に供し得る機械的強度と優れた柔軟性とを具備したポリ乳酸系長纖維不織布を得ることが可能となる。本発明の不織布によれば、この不織布を構成する長纖維どうしが部分的に熱圧着されているのが好適である。このような構成によれば、ポリ乳酸系長纖維がその交叉点において結合せずに部分的に熱圧着されることにより不織布としての形態が保持されているので、公知のポリ乳酸系不織布が有している硬くてもらい特性に反して、実用に供し得る機械的強度を保持しつつ優れた柔軟性を備えるものとなる。

【0010】あるいは、本発明の不織布によれば、あらかじめ形成された部分的な仮熱圧着点における長纖維同士が三次元的交絡処理によって一部剥離してなる点状融着部分を有し、かつ前記点状融着部分以外の非融着部分における長纖維が相互に三次元的に交絡して全体として一体化されているのが好適である。このような構成によれば、ウエブに部分的な仮熱圧着点が予備的に形成され、これに三次元的交絡処理が施されることによって、仮熱圧着点の少なくとも一部が剥離されて、この剥離し

た纖維を含めた構成長纖維が三次元的交絡を形成して不織布としての形態が保持される。このため、公知のポリ乳酸系不織布が有していた硬くてもらい特性に反して、実用に供し得る機械的強度および寸法安定性を保持しつつ優れた柔軟性を備えるものとなる。

【0011】あるいは、本発明の不織布によれば、一旦形成された部分的な仮熱圧着点における長纖維同士が、三次元的交絡処理によって完全に剥離して、相互に三次元的に交絡して、全体として一体化されているのが好適である。あるいは、本発明の不織布によれば、長纖維にて構成されるウエブの少なくとも片面が、全面的に熱圧着されているのが好適である。このような構成によれば、内部に不織構造を保持しながら表面のみがフィルム化された構造を有するものとなる。このため、表面のフィルム化された部分によって通気透湿性および遮水性を発揮するとともに優れた機械的強力を具備するものであるが、同時に内部に不織構造が存在することにより完全なフィルム状シートに比べて優れた柔軟性を併せもつ新規な多機能性不織布となる。

#### 【0012】

【発明の実施の形態】本発明に適用される長纖維は、ポリ乳酸系重合体からなる。ポリ乳酸系重合体としては、ポリ(D-乳酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる重合体とのうち、融点が100°C以上の重合体あるいはこれらのブレンド体が用いられる。

【0013】ポリ乳酸系重合体としてポリ(D-乳酸)やポリ(L-乳酸)のようなホモポリマーを用いる場合には、特に、製糸工程での製糸性の改善と、得られる纖維並びに不織布の柔軟性の向上とを目的として、可塑剤を添加することが望ましい。この場合の可塑剤としては、トリアセチル、乳酸オリゴマー、ジオクチルフタレート等が用いられる。その添加量は、1~30重量%、好ましくは5~20重量%とするのが良い。

【0014】本発明においては、不織布を構成する纖維の融点が100°C以上であることが、得られる不織布の耐熱性等の観点から好ましく、従って、この纖維を形成するポリ乳酸系重合体の融点が100°C以上であることが重要である。詳細には、ポリ乳酸のホモポリマーであるポリ(L-乳酸)やポリ(D-乳酸)の融点は約180°Cであるが、ポリ乳酸系重合体として前記コポリマーを用いる場合には、コポリマーの融点が100°C以上となるようにモノマー成分の共重合量比を決定することが重要となる。L-乳酸とD-乳酸とのコポリマーにおいては、L-乳酸とD-乳酸との共重合量比が、モル比で、(L-乳酸)/(D-乳酸)=1.0/9.0~0.1/10.0、あるいは(L-乳酸)/(D-乳酸)=9.0/1.0~

100/0であることが、その融点を100°C以上とするために必要である。この範囲を外れると、重合体の融点ひいては不織布の構成繊維の融点が100°C未満となることがある。重合体が非晶性ポリマーとなるために、製糸時の冷却性が低下するとともに、得られた不織布の耐熱性が損なわれるためその使用用途が制限されることとなる。

【0015】乳酸ヒドロキシカルボン酸との共重合体である場合におけるヒドロキシカルボン酸としては、グリコール酸、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸、ヒドロキシベンタノン酸、ヒドロキシカプロン酸、ヒドロキシペタノン酸、ヒドロキシオクタン酸等が挙げられる。これらの中でも特に、ヒドロキシカプロン酸またはグリコール酸が、微生物分解性能および低コストの点から好ましい。

【0016】ポリ乳酸系重合体からなる長纖維は、纖維断面が単相である場合には、複屈折率が $1.0 \times 10^{-3}$ ～ $2.5 \times 10^{-3}$ であり、結晶化度が12～30重量%であり、纖維軸方向の結晶サイズが80Å以下であることが必要である。上記複屈折率は分子配向の度合いを示すものであるが、これが $1.0 \times 10^{-3}$ 未満であると、まだ結晶化度が12重量%未満であると、まだ分子配向が十分でなく、結晶性が低過ぎるため、纖維を構成したときの残留伸度が高く、したがって不織布化したときの寸法安定性や機械的特性に劣り、実用的なものが得られなくなる。また、熱に対する安定性を欠くことになるため、高温下で用いたときに不織布に収縮が発生しやすくなる。

【0017】反対に複屈折率が $2.5 \times 10^{-3}$ を超え、結晶化度が30重量%を超え、纖維軸方向の結晶サイズが80Åを超えると、最終的に得られる不織布の寸法安定性、機械的特性、熱的安定性は優れたものとなるが、纖維の剛性が高くなるため、不織布の柔軟性が劣るものとなり、本発明の目的とするものとなる。すなわち本発明によると、ポリ乳酸系重合体の複屈折率と結晶化度と纖維軸方向の結晶サイズとを上記範囲とすることで、比較的低結晶性でありながら、結晶領域では十分に結晶が成長して配向しているため、上述のように寸法安定性、機械的特性、熱的安定性に優れた実用的な不織布が得られることがある。一方非晶領域では配向が進んでいないため、構成繊維すなわち不織布の柔軟性が向上することになる。したがって、本発明によると、機械的特性に優れながら柔軟性を併せ持った不織布を得ることができる。

【0018】このため、複屈折率は $1.5 \times 10^{-3}$ ～ $1.8 \times 10^{-3}$ であることが、結晶化度は17～25重量%であることが、また纖維軸方向の結晶サイズは75Å以下であることが好ましい。なお、結晶サイズの下限は45Å程度である。これよりも結晶サイズが小さいと、纖維の機械的特性が劣って実用的なものでなくなる。なお、本発明の不織布を構成する纖維の重合体の結晶配向度

は、90%以上であることが好ましい。

【0019】以上のポリ乳酸系重合体は、単独で用いても良いし、あるいは二種以上のポリ乳酸系重合体を混合してブレンド体として用いることもできる。ブレンド体として用いる場合には、製糸性等を勘案して、混合種、混合量等の条件を適宜設定すると良い。前記重合体には、各々、必要に応じて、例えば脱脂剤、顔料、結晶核剤、防炎剤、消臭剤、帯電防止剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、抗菌剤、親水剤などの各種添加剤を、本発明の効果を損なわない範囲内で添加しても良い。

【0020】不織布を構成する長纖維の断面は、中実断面やその他任意の纖維横断面形態を取り得る。そのうち、特に、中空断面、異形断面、芯鞘複合断面、分割型複合断面のいずれかであることが好ましい。長纖維が中空横断面を有する場合は、得られた不織布に優れた分解性能を付与することができる。これは、外周部分から侵食をはじめた微生物や水分が中空部に侵入することで纖維部に貫通孔が形成される結果、単位ポリマー重量当たりの表面積が大きくなるため、微生物等による分解速度が促進されるからである。さらに、中空断面を有する纖維は、製糸の際に冷却領域を単位時間当たりに通過するポリマー重量が少ないため、また内部に比熱が小さい空気を含んでいるため、筋糸糸糸の冷却性を向上させるに著しい効果を発揮する。

【0021】長纖維の横断面が多角形状の異形断面あるいは扁平形状の異形断面である場合にも、製糸の際に効率化系の冷却性、開織性に優れるとともに、得られた不織布の分解性能が向上する。なぜなら、異形断面纖維においても、単位ポリマー重量当たりの表面積が大きくなるからである。長纖維の横断面が芯鞘複合断面である場合は、ポリ乳酸系重合体と複数のポリ乳酸系重合体のブレンド体との少なくともいずれか一方が纖維構成成分とされたうえで、二種類の構成成分にて芯鞘構造の纖維が形成され、この二種類の成分のうち融点の高い方の成分（以下、「高融点成分」という）が芯に配され、融点の低い方の成分（以下、「低融点成分」という）が鞘に配されることが重要である。そして、この場合の両成分の融点差が少なくとも5°C以上、好ましくは10°C以上、さらに好ましくは20°C以上であることが肝要である。これにより、ウエブに熱圧着を施す際に、比較的融点の低い鞘成分の融点近傍の温度での処理が可能となり、芯部の高融点成分に融解を生じることがなく、したがって得られる不織布に優れた柔軟性を具備させることができる。

【0022】長纖維の横断面が分割型複合断面である場合は、得られる不織布の分解性および柔軟性に優れた効果を発揮することができる。ここで、分割型複合断面とは、ポリ乳酸系重合体と複数のポリ乳酸系重合体のブレンド体との少なくともいずれか一方が纖維構成成分とされたうえで、二種類の構成成分が纖維横断面の周方向に

沿って互いに分割された形態をもっており、かついずれの構成成分もが繊維の長さ方向に連続すると共に繊維表面に露出するような繊維横断面をいう。これらの繊維横断面形態によれば、より生分解性能に優れた成分（ポリ乳酸の場合は、通常は低融点成分）の一部が分解されることにより繊維自体の分解が促進されるため、得られる不織布の分解性を向上させることができる。さらに、このような複合断面の繊維が中空部を有すると、生分解性と、紡出糸条の冷却性および開縫性とをより向上させることができ。このような分割型複合断面においても、後述のようにウエブを熱圧着する際に、低融点成分の融点の近傍の温度で熱融着を施すことができるため、高融点成分に融解を生じることなく、したがって得られる不織布に優れた柔軟性を具備することができる。

【0023】なお、前述の断面形態以外に、例えば丸型複合断面や、三角型、四角型、六角型、扁平型、Y字型、T字型などの、種々の異形複合断面の形態であっても差し支えない。本発明の長繊維不織布は、長繊維同士が交叉点で結合することなしに、ウエブが部分的に熱圧着されて、不織構造を有するシート状形態を保持していくようにすることができる。このような不織布は、部分的に形成される点状融着区域のみが接着されているものであるため、優れた柔軟性を具備するものである。

【0024】また本発明の長繊維不織布は、あらかじめ部分的な熱圧着を施しておくことにより、その後の三次元的交絡処理の際のためのウエブの形態を一時的に保持させることができる。その結果、得られた不織布の形態保持性および寸法安定性をも向上させることができる。この部分的熱圧着点は、その後の三次元的交絡処理により、その全部あるいは少なくとも一部において繊維が剥離され、この剥離した繊維を含めた長繊維が三次元的交絡を形成することから、実用に供し得る機械的強度および寸法安定性を具備したもののとなる。しかも、得られた不織布は、大部分の非融着領域を保持することになるため、優れた柔軟性を併せもつことができる。

【0025】また本発明の長繊維不織布は、長繊維で形成されるウエブの少なくとも片面が全面的に熱圧着されることにより不織布としての形態が保持されているように構成することができる。これにより、内部に不織構造を保持しながら表面のみがフィルム化された構造を有することができる。これにより、得られた不織布は、表面のフィルム性状によって通気遮断性および遮水性を発揮するとともに優れた機械的強力を有し、同時に内部に不織構造が存在することにより完全なフィルム状シートに比べて優れた柔軟性をも具備することができる。しかも、フィルム化した表面部と不織構造の内部とが連続的に接合しているので、単に不織ウエブの表面にフィルムを積層したのにも比べて良好な層間剥離強力を有する。

【0026】本発明の不織布は、沸水吸収率が1.5%以下であることが必要である。沸水吸収率が1.5%以下で

あってはじめて、実用的で熱的に安定であるといえることになる。不織布を構成する長繊維の単糸纖度は、1～1.2デニールであることが好ましい。単糸纖度が1デニール未満であると、紡糸・引取工程において単糸の切断が頻発し、操業性とともに得られる不織布の強度も劣る傾向となる。逆に、単糸纖度が1.2デニールを超えると、紡出糸条の冷却が不十分になるとともに、得られる不織布の柔軟性が損なわれることとなり、好ましくない。

【0027】本発明の不織布は、目付100g/m<sup>2</sup>に換算時の引張強力が10kg/5cm幅以上であることが好ましい。ここで、引張強力とは、後述のようにJIS-L-1096に準じて測定した場合における引張破断強力の経方向および縫方向の平均値を意味し、これを目付100g/m<sup>2</sup>に比例換算したもので得られた値で評価が行われる。不織布の引張強力が10kg/5cm幅未満であると、余りにも機械的強度に欠けるため、実用に耐えない場合がある。

【0028】次に、本発明にもとづくポリ乳酸系長繊維不織布の製造方法について説明する。本発明の長繊維不織布は、いわゆるスパンボンド法にて効率良く製造することができる。すなわち、ASTM-D-1238に準じて温度210°Cで測定したMFRが1.0～100g/10分である前述のポリ乳酸系重合体成物を用いて、この重合体の融点をTm°Cとしたときに（Tm+20）°C～（Tm+80）°Cの範囲の紡糸温度で溶融して、所望の繊維横断面となる紡糸口金を介して紡糸し、得られた紡出糸条を公知の横型吹付や環状吹付等の冷却装置を用いて冷却せしめた後、エアーサッカー等の吸引装置を用いて、3000～6500m/minの気流で目的纖度となるように牽引細化させ、引き続き、吸引装置から排出された糸条群を開縫させた後、スクリーンからなるコンベアの如き移動堆積装置上に開縫堆積させてウエブとする。次いで、この移動堆積装置上に形成されたウエブを熟処理することによって不織布を形成する。

【0029】ポリ乳酸系重合体成物のMFRは、前述のように、ASTM-D-1238に記載の方法に準じて210°Cで測定して1.0～100g/10分であることが重要である。MFRが10g/10分未満であると、溶融粘度が高過ぎるために高速製糸性に劣る結果となる。逆にMFRが100g/10分を超えると、溶融粘度が低すぎるために曳糸性が劣ることとなり、安定した操業が困難となる。

【0030】溶融紡糸の際には、前述のように、用いる重合体の融点をTm°Cとしたときに（Tm+20）°C～（Tm+80）°Cの範囲の温度で溶融しなければならない。但し、二種以上のポリ乳酸系重合体のブレンド体を用いる場合は、ブレンド体を構成する重合体のうち最も高い融点を有する重合体の融点をTm°Cとする。紡糸温度が（Tm+20）°Cより低いと、高速気流による曳糸

・引取性に劣る。逆に( $T_m + 80$ ) °Cを超えると、冷却過程での結晶化が遅れ、フィラメント間で融着を生じたり開織性に劣ったりするばかりでなく、ポリマー自体の熱分解も進行するため、柔軟で均一な地合いの不織布を得ることが困難となる。

【0031】吸引装置を用いて紡糸糸を牽引細化する際には、前述のように、引取速度が3000~6500m/minとなるようになることが重要である。この引取速度は重合体のMFRに応じて適宜選択できるが、この範囲とすることで、本発明の目的とする構造物性を有する不織布が得られる。すなわち、この範囲の高速による紡糸応力を付与することによって、ポリマーの分子配向が進み、結晶化が進むことになる。また、結晶領域の配向が優先的に進み、織維軸方向の結晶が成長するが、その一方で非晶領域のポリマー分子が十分配向していない状態をつくりあげることができる。

【0032】引取速度すなわち紡糸速度が3000m/min未満であると、実用的な不織布強度を得るという観点でまだ分子配向が十分でなく、残留伸度が高い状態にしかならない。このような低配向かつ低結晶性の不織布は、寸法安定性や機械的特性に劣るものとなる。しかも安定性に劣るため、特に高温下で不織布を用いたときに収縮が発生する。また、このような低速紡糸を行った場合に、得られた織維は、部分的な熱圧着の際に比較的低温での圧着が可能である。例えば、織維の構成重合体の融点よりも50°C以上低い温度での圧着が可能である。しかし、この場合の織維は、熱的に不安定であるため、部分的な熱圧着の際に、エンボスロールのエンボス部(凸部)と接する部位である熱圧着部以外の、周囲の織維までもが熱による影響を受ける。このため、得られる不織布は、柔軟性に劣り硬いものとなる。これは、3000m/min未満の引取速度によって得られた織維の複屈折率と結晶化度とがあまりに低く、すなわち非晶部領域が多く、したがって熱を受けると変形(収縮)しやすいためである。

【0033】これに対し、本発明のように3000m/min以上の引取速度により得られた不織布構成織維は、高速の紡糸応力によって分子配向が進み、結晶領域で結晶が成長して配向しているため、熱的に安定している。このため、上記低速紡糸により得られた織維の部分的な熱圧着の際に適用される織維の構成重合体の融点よりも50°C以上低い温度を適用すると、熱圧着が不十分となつて、機械的特性に乏しい不織布となりやすい。よって圧着温度は、織維を構成する重合体の融点未満の温度、特に(織維を構成する重合体の融点-3) °C~融点未満の温度を適用するのが好ましい。しかも、このような部分的な熱圧着によって得られた本発明の不織布は、エンボスロールのエンボス部と接する部位のみが熱の影響を受け、その周囲の織維は熱により影響されない。したがって、柔軟性と機械的特性に優れた不織布が得られ

る。

【0034】反対に引取速度が6500m/minを超えると、それにより得られる織維は、織怪の均整度に劣るものとなる。また、結晶性は向上するが、紡糸応力が高くなり、それにもとづく歪みによって結晶構造が乱れ、この結晶構造内にミクロポイドが発生する傾向となり、実用的な織維が得られなくなる。また織維および不織布の機械的特性も劣ることになる。

【0035】ウエブの熱処理の際には、部分熱圧着装置を用いて、織維を構成する重合体のうち最も融点の低い重合体の融点よりも低い温度で部分的に熱圧着を施す。このウエブの部分的熱圧着とは、エンボス加工又は超音波融着処理によって点状融着区域を形成するものを行い、具体的には、エンボスロールと表面が平滑な金属ロールとの間にウエブを通して長織維間に点状融着区域を形成する方法を採用する。

【0036】さらに詳しく述べ、ウエブにおける特定の部分領域である個々の熱圧着領域が0.2~1.5mm<sup>2</sup>の面積を有し、その領域が丸型、楕円型、菱型、三角型、T字型、井型等の任意の形状であり、かつその領域の分布密度すなわち圧着点密度が4~1000点/cm<sup>2</sup>であるのが良い。圧着点密度が4点/cm<sup>2</sup>未満であると得られる不織布の機械的強力や形態保持性が向上せず、逆に、圧着点密度が1000点/cm<sup>2</sup>を超えると得られる不織布が疎密化して柔軟性を損なう傾向にあり、いずれも好ましくない。また、ウエブの全表面積に対する全熱圧着領域の面積の比、すなわち圧着面積率は、個々の圧着点の面積に依存するが、3~50%であるのが良い。この圧着面積率が3%未満であると得られる不織布の機械的強力や形態保持性が向上せず、逆に、圧着面積率が50%を超えると、得られる不織布が粗密化して柔軟性を損なう傾向にあり、いずれも好ましくない。

【0037】熱圧着を施す際の加工温度、すなわちエンボスロールの表面温度は、前述のように、用いる重合体の融点よりも低い温度でなければならぬ。但し、熱圧着を施すウエブが、二種以上のポリ乳酸系重合体のブレンド体よりもなる長織維から形成されている場合、あるいは、二成分で構成される例えば前述の芯糸複合断面又は分割型複合断面等の複合断面を有する長織維から形成されている場合には、ブレンド体を構成する重合体のうち最も低い融点を有する重合体の融点。あるいは、複合断面を構成する二成分のうち最も低い融点を有する成分の融点を基準にすることとし、これらの融点よりも低い加工温度としなければならない。この温度を超えると、不織布の風合いが硬くなつて柔軟な不織布が得られないばかりか、熱圧着装置に重合体が固着し操業性を著しく損なうこととなる。

【0038】熱圧着処理の際には、前述の加熱されたエンボスロールを用いる方法のほか、超音波融着装置を用いバターンロール上で超音波による高周波を印加してバ

ターン部の長纖維間に点状融着区域を形成する方法を探用することができる。さらに詳しくは、超音波融着装置は、周波数が約20 kHzのホーンと呼称される超音波発振器と、円周上に点状または帯状に凸状突起部を具備するバターンロールとからなる装置である。この超音波発振器の下部にバターンロールが配設され、これらの超音波発振器とバターンロールとの間にウエブを通すことにより部分的な熱融着を行うことができる。このバターンロールに配設される凸状突起部は、1列あるいは複数列であっても良く、またその配設が複数列の場合には、並列あるいは千鳥形のいずれの配列でも良い。

【0039】このエンボスロールあるいは超音波融着装置を用いた部分的な熱圧着処理は、連続工程あるいは別工程のいずれであっても良い。いずれの方法を採用するかは、不織布の使用用途に応じ適宜選択すれば良い。次に、本発明にもとづく、あらかじめ形成された部分的な仮熱圧着点における長纖維同士が三次元的交絡処理によって一部剥離してなる点状融着部分を有し、あるいは一旦形成された部分的な仮熱圧着点における長纖維同士が、三次元的交絡処理によって完全に剥離したうえで、非融着部分における長纖維が相互に三次元的に交絡して全体として一体化されている不織布の製造方法について説明する。

【0040】この場合は、上述のように移動堆積装置上に形成されたウエブに、部分熱圧着装置を用いて、ウエブを構成する長纖維のうち最も低い融点を有する重合体の融点を(  $T_m$  ) °Cとしたとき(  $T_m - 80$  ) °C～(  $T_m - 50$  ) °Cの加工温度で、かつロールの線圧を5～30 kg/cmとして、部分的に熱圧着を施すことにより仮熱圧着点を形成する。次いで、三次元的交絡処理を施すことによって、仮熱圧着点における構成長纖維同士の少なくとも一部を剥離させて、この剥離状態の纖維を含めた長纖維の全体を相互に三次元的に交絡させて全体として一体化することで、長纖維不織布を得ることができる。

【0041】このように、あらかじめ部分的な仮熱圧着を施しておくことにより、一時に形態を保持し、その後の三次元的交絡処理の際のウエブの形態保持性および機械的強力向上させて、取り扱いを容易にすることができる。しかも、この部分的な仮熱圧着点は三次元的交絡処理によって少なくとも一部が剥離し、最終的な不織布においては大部分の非融着領域を保持することになるため、優れた柔軟性を有する不織布を得ることができる。三次元的交絡処理によって部分的な仮熱圧着点の全てが完全に剥離した場合は、不織布の形態は保持されつつ、得られる不織布には極めて優れた柔軟性が付与される。一方、剥離が完全に行われず一部に点状の融着部分が残存する場合は、剥離した纖維を含めた構成長纖維による三次元的な交絡により、寸法安定性および機械的強力が付与されるのに加えて、残存する点状融着部分によってす

法安定性および機械的強力の補強的効果が得られる。

【0042】このあらかじめ施された部分的な仮熱圧着は、個々の熱圧着領域が0.2～1.5 mm<sup>2</sup>の面積を有し、その圧着点密度が4～100点/cm<sup>2</sup>、さらには好ましくは5～80点/cm<sup>2</sup>であるのが良い。圧着点密度が4点/cm<sup>2</sup>未満であると熱圧着後のウエブの機械的強力や形態保持性が向上せず、逆に、圧着点密度が100点/cm<sup>2</sup>を超えると三次元的交絡処理時の加工性に劣ることとなる。また圧着面積率は3～50%、さらには好ましくは4～40%であるのが良い。この圧着面積率が3%未満であると得られる不織布の寸法安定性が向上せず、逆に圧着面積率が50%を超えると三次元的交絡処理時の加工性に劣る傾向にある。

【0043】仮熱圧着を施す際の上述の加工温度とロールの線圧との条件は特に重要で、加工温度が(  $T_m - 80$  ) °Cよりも低温であり、あるいは、線圧が5 kg/cm未満であると、熱圧着処理による効果が乏しく、得られた不織布の形態保持性および寸法安定性が向上しない。逆に、加工温度が(  $T_m - 50$  ) °Cよりも高温であり、あるいは、線圧が30 kg/cmを超えると、熱圧着処理による効果が過大となるため、三次元的交絡処理を施す際に、熱圧着部分の一部を剥離させ難く、従つて、非融着部分における長纖維相互間に三次元的交絡を十分に形成できず、不織布全体としての一体化がなされ難くなる。

【0044】このように加工温度とロールの線圧との条件を設定することで、長纖維ウエブを構成する纖維間に一旦予備的に部分的な仮熱圧着点を形成することができる。この部分的な仮熱圧着点は、熱圧着後のウエブの形態保持性および機械的強力を向上させて、その後の三次元的交絡処理の際の取り扱いを容易にするとともに、三次元的交絡処理の際の機械的外力によってその少なくとも一部における纖維間を容易に剥離することができる程度の圧着力を有するものである。

【0045】部分的な熱圧着の後に行われる三次元的交絡は、ウエブに加压液体流を作用せしめる加压液体流処理か、あるいはニードルパンチ処理によって形成される。加压液体流処理によって三次元的交絡を形成せる場合は、前述のスパンボンド法により得られたウエブに部分的な仮熱圧着点を形成したものを、移動する多孔支持板上に載置し、これに加压液体流を作用させることで、熱圧着部の少なくとも一部が剥離された纖維を含んだ長纖維を相互に三次元的に交絡させて全体として一体化させる。

【0046】加压液体流を発生させるためには、たとえば孔径が0.05～2.0 mm、好ましくは0.1～0.4 mmである噴射孔を、孔間隔を0.3～1.0 mmとして1列あるいは複数列に多數配置したオリフィスを有する装置を用い、噴射圧力を5～150 kg/cm<sup>2</sup> Gとして加压液体を噴射させる。液体流の圧力が5 kg/cm<sup>2</sup>

$c\text{ m}^2$  G未満であると、熱圧着部分の一部を剥離させ難く、構成長繊維相互間に三次元的交絡を十分に形成できない。逆に、液体流の圧力が  $150\text{ kg/cm}^2$  Gを超えると、繊維間の交絡が緻密になり過ぎるため、得られた不織布の柔軟性が低下する傾向となる。噴射孔の配列は、ウエブの進行方向と直交する方向に沿って列状になるようにする。噴射孔が複数列配される場合は、噴射孔が千鳥に配されることが、ウエブに均一な加圧液体流の作用を付与するうえで、好ましい。噴射孔を配したオリフィスもまた、複数個配置しても良い。加圧液体としては、水あるいは温水を用いるのが一般的である。噴射孔とウエブとの距離は、 $1\sim15\text{ cm}$  とするのが良い。この距離が  $1\text{ cm}$  未満であると、この処理により得られる不織布の地合が乱れ、逆に、 $15\text{ cm}$  を超えると、液体流がウエブに衝突したときの衝撃力が低下して三次元的な交絡が十分に施されない。加圧液体流処理を施す際に、ウエブを拘束する支持材は、例えば  $15\sim100\text{ メッシュ}$  の金網等のメッシュスクリーンや有孔板など、加圧液体流がウエブを貫通し得るものであれば、特に限定されない。

【0047】なお、以上のように片面に交絡処理の施されたウエブを更に反転し、同様に加圧液体流を供給して交絡を施すことにより、表裏ともに緻密に一体化した、寸法安定性および機械的強力に特に優れた不織布を得ることができる。加圧液体流処理を施した後、処理後のウエブから過剰水分の除去が必要であるが、この過剰水分の除去に際しては、公知の方法を採用することができる。例えばマンガルロール等の絞り装置を用いて過剰水分をある程度機械的に除去し、引き続き、連続熱風乾燥機等の乾燥装置を用いて残余の水分を除去することができる。この乾燥処理は、通常の乾熱処理のほか、必要に応じて温熱処理としても良い。また、乾燥処理を施すにあたり、乾燥処理温度や時間等の処理条件を選択するに際しては、単に水分の除去を図るに止まらず、不織ウエブに適度の収縮を許容するよう条件を選択しても良い。

【0048】ニードルパンチ処理によって三次元的交絡を形成させる場合は、スパンボンド法により得られたウエブに部分的な仮熱圧着点を施したものにパンチ針を貫通させることにより、熱圧着部の少なくとも一部が剥離された繊維を含んだ長繊維を相互に三次元的に交絡させて、全体として一体化させる。ニードルパンチ処理は、針深さ  $5\sim50\text{ mm}$  、パンチ密度  $50\sim400\text{ パンチ/cm}^2$  の条件で行うのが良い。針深が  $5\text{ mm}$  未満であると交絡度が少なく形態の安定性に劣り、逆に  $50\text{ mm}$  を超えると生産性的観点から問題となる。パンチ密度が  $50\text{ パンチ/cm}^2$  未満であると、熱圧着部分における構成長繊維間がうまく剥離できないとともに、繊維間の交絡が十分に行われず、不織布の寸法安定性に欠ける傾向がある。逆に  $400\text{ パンチ/cm}^2$  を超えると、パンチ

針によって繊維が切断されて、得られる不織布の機械的強力が低下することがある。パンチ針は、単糸繊度、使用用途等に応じて、その太さ、長さ、バーブの数、バーブの型等が選択される。

【0049】上述の加圧液体流処理は比較的低目付 ( $15\sim100\text{ g/m}^2$ ) の製品に適用され、これによって柔軟性および機械的強度に優れた不織布が得られる。また、ニードルパンチ処理は比較的高目付 ( $100\sim500\text{ g/m}^2$ ) の製品に適用され、これによって柔軟性、通気性、通水性に優れた不織布が得られる。目付によつて適用する処理を選択するのは、加圧液体流とニードルパンチとのウエブ貫通力が異なるからである。例えば、高目付品に加圧液体流処理を施した場合には、ウエブの厚み方向に加圧液体流が貫通しないので、ウエブの表面しか交絡せず、ウエブ全体に均一な三次元的交絡が形成されない。従って、いずれの処理法を採用するかは、不織布の目付、使用用途に応じ適宜選択するのが望ましい。

【0050】このようにすると、三次元的交絡処理によつて破壊されてなお残存するところの点状融着部分においては、圧着点密度が  $20\text{ 点/cm}^2$  以下、さらに好ましくは  $10\text{ 点/cm}^2$  以下であり、かつ圧着面積率が  $15\%$  以下、さらに好ましくは  $10\%$  以下となる。このような点状融着部分を有する長繊維不織布は、非融着部分が存在することによって、三次元的交絡処理による長繊維間相互の交絡を効率良く形成することができ、優れた寸法安定性、機械的強力を備えることができる。さらに、一部に点状融着部分が残存している場合には、点状融着部分によってさらに寸法安定性、機械的強度が補強されるものである。また、前述のように三次元的交絡処理により仮熱圧着点の一部または全部が剥離されるので、結果として大きな非融着領域を有することになり、優れた柔軟性を発揮すると同時に、非融着部分においては三次元的な交絡を有するので、寸法安定性、機械的強力をも併せもつ。

【0051】次に、本発明にてもとづく、少なくとも片面が全面的に熱圧着された不織布の製造方法について説明する。この全面的な熱圧着を施す前に、移動堆積装置上に形成されたウエブに必要に応じて部分的な仮熱圧着処理を施すことができる。また、仮熱圧着処理の後に、嵩高性の向上を目的として、三次元的交絡処理を施すことができる。これは、スパンボンド法により連続して形成されたウエブを一旦巻き取った際に、ウエブ同士が絡まり合って、再び巻き出しが困難となるのを防止するためである。従って、ここで行う部分的な仮熱圧着処理は、巻き取った際の絡まり合いを防止することができる程度の仮止め的な形態保持力を付与するものであれば良い。

【0052】全面的な熱圧着は、加熱された表面が平滑な金属ロールによって、不織布の表面およびその付近の長

繊維を融解させてフィルム化させることにより行われる。完全な熱圧着を施す際の加工温度、すなはち金属コードの表面温度は、用いる重合体の融点を  $T_m$  としたときに、( $T_m - 10$ )  $^{\circ}\text{C}$  以下の温度としなければならない。但し、熱圧着を施すエラストマーは、二種以上のポリ乳酸系重合体のブレンド体よりなる長繊維から形成されている場合、あるいは、二種以上の成分で構成される例えば前述の芯鞘複合断面又は分割型複合断面等の複合断面を有する長繊維から形成されている場合には、ブレンド体を構成する重合体のうち最も低い融点を有する重合体の融点、あるいは、複合断面を構成する二種以上の成分のうち最も低い融点を有する成分の融点を基準にする。この温度を超えると、熱圧着装置に重合体が固着して操業性を著しく損なうばかりか、不織布が粗剛化して風合いが悪化する。

【0053】熱圧着を施す際には、ロールの線圧を  $0.01 \text{ kg/cm}$  以上とすることが重要である。ロールの線圧が  $0.01 \text{ kg/cm}$  未満であると、熱圧着処理効果が乏しく、得られた不織布の機械的強力および寸法安定性が向上しない。一方、ロールの線圧が  $10 \text{ kg/cm}$  を超えると、熱圧着処理効果が過大となるため、不織布全体がフィルム化し、疎剛化した不織布しか得られない傾向となるため、ロールの線圧は  $10 \text{ kg/cm}$  以下とすることが好ましい。

【0054】本発明においては、不織布の少なくとも片面に熱圧着が施されておれば良い。特に不織布の両面に熱圧着を施した場合は、表面に通気遮断性、遮水性を有するフィルム層を備え、その間に空気を含む不織布層を備える三層構造を形成することとなるので、保温性に優れた不織布を得ることができる。この熱圧着処理は連続工程あるいは別工程のいずれであっても良い。

#### 【0055】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明する。なお、本発明はこれらの実施例のみに限定されるものではない。下記の実施例および比較例において、各物理量は以下により求めた。

(1) MFR ( $\text{g}/10 \text{ 分}$ ) ; ASTM-D-1238 に記載の方法に準じて温度  $210^{\circ}\text{C}$  で測定した。

【0056】(2) 融点 ( $^{\circ}\text{C}$ ) ; パーキンエルマ社製示差走査型熱量計 DSC-7 型を用い、試料重量を  $5 \text{ mg}$ 、昇温速度を  $20^{\circ}\text{C}/\text{分}$  として測定して得られた融解吸熱曲線の吸熱ピークの極値を与える温度を融点  $T_m$  ( $^{\circ}\text{C}$ ) とした。

(3) 複屈折率；ベレックコンベンセーターを備えた偏光顕微鏡を用い、浸液としてトリクロルエチレンを用いて測定した。

【0057】(4) 結晶化度(重量%) ; 測定対象の長繊維を粉末化して A1 試料枠 ( $20 \times 18 \times 0.5 \text{ mm}$ ) に充填したうえで垂直方向に保持したサンプルについて、理学電機社製の RAD-r B 型 X 線発生装置によ

り、Cu-K $\alpha$  線をこのサンプルに対し直角方向から照射した。受光側には、湾曲グラフイトモノクロメータを用いた。そのうえで、 $2\theta = 5 \sim 125^{\circ}$  の範囲で走査を行い、Ruland 法により重量百分率として結晶化度を求めた。

【0058】(5) 繊維軸方向の結晶サイズ ; マックスサイエンス社製の MXP<sup>3</sup> 型の X 線発生装置を使用して、対称透過法により測定した。詳細には、繊維が一方にかけ取りされかつ引き戻しで垂直方向に保持されたサンプルについて、Ni フィルターで沪過された Cu-K $\alpha$  線をこのサンプルの直角方向から照射した。そして、繊維軸 (c 軸) の方向に対応した反射の中で強度の高い面反射について回折強度を測定し、その半価幅 B (ラジアン) から、次の Scherrer の式を用いて、結晶サイズ  $D_{\text{hkl}}$  を求めた。

$$[0059] D_{\text{hkl}} = K \cdot \lambda / \beta \cos \theta$$

$$\text{ただし, } \beta = (B^2 - b^2)^{1/2}$$

ここで、K は定数 ( $K = 0.9$ )、 $\lambda$  は X 線の波長 ( $\lambda = 0.15418 \text{ nm}$ )、 $\theta$  は Bragg 角、b は装置定数 ( $B_{\text{cal}} = 2.684 / 1000 \times 2\theta + 0.9972$ ) である。

【0060】(6) 結晶配向度 ; 赤道走査時に認められる (200) 面反射の  $2\theta = 16.18^{\circ}$  における回折ピークを用いて方位角方向の角度を測定し、その半価幅 H から簡易的に式を用いて結晶配向度 f を求めた。

$$f = 100 / (180 - H) / 180$$

(7) 糸切れ性 ; 織出糸糸をエアサッカーにて引き取る際に、10 時間あたりに糸切れが発生しなかったものを糸切れ性が良好であると判定して○で表した。また 10 時間あたりに糸切れが発生したものを糸切れ性が不良であると判定して×で表した。

【0061】(8) 目付 ( $\text{g}/\text{m}^2$ ) ; 標準状態の試料から織  $10 \text{ cm} \times \text{横 } 10 \text{ cm}$  の試料片各 10 点を作製し、平衡水分に至らしめた後、各試料片の重量 (g) を秤量し、得られた値の平均値を単位面積当たりに換算して、不織布の目付 ( $\text{g}/\text{m}^2$ ) とした。

(9) KGSM 引張強力 ( $\text{kg}/5 \text{ cm}$  幅) ; JIS-L-1-1096 に記載のストリップ方法に準じて測定した。すなはち、試料長が  $20 \text{ cm}$ 、試料幅が  $5 \text{ cm}$  の試料片各 10 点を作製し、各試料片毎に不織布の経および縦方向について、定速伸張型引張試験機 (東洋ボールドウイン社製テニソン UTM-4-1-1-000) を用いて、つかみ間隔  $10 \text{ cm}$ 、引張速度  $20 \text{ cm}/\text{分}$  で伸張し、得られた切断時荷重値 ( $\text{kg}/5 \text{ cm}$  幅) の平均値を  $100 \text{ g}/\text{m}^2$  の目付に換算した値を KGSM 引張強力 ( $\text{kg}/5 \text{ cm}$  幅) とした。

【0062】(10) 圧縮剛軟度 (g) ; 試料長が  $10 \text{ cm}$ 、試料幅が  $5 \text{ cm}$  の試料片計 5 点を作製し、各試料片毎に横方向に曲げて高さが  $5 \text{ cm}$  の円筒状物とし、各々その端部を接合したものを圧縮剛軟度測定試料とし

た。次いで、測定試料毎に、各々その軸方向について、定速伸長型引張り試験機（東洋ボールドウィン社製テンションUTM-4-1-100）を用い、圧縮速度5cm/分で圧縮し、得られた最大荷重（g）の平均を不織布の圧縮剛軟度とした。従って、この圧縮剛軟度は、値が小さいほど柔軟性が優れることを意味することになる。

【0063】（11）生分解性能：約58℃に維持された熱成コンポスト中に不織布を埋設し、3ヶ月後に取り出し、不織布がその形態を保持していない場合、あるいは、その形態を保持していても引張強力が埋設前の強力初期値に対して50%以下に低下している場合に、生分解性能が良好であると評価し、○で示した。これに対し、強力が埋設前の強力初期値に対して50%を超える場合に、生分解性能が不良であると評価し、×で示した。

【0064】（12）沸水収縮率（%）：20cm×20cmの試料を沸騰水中で15分間放置した後の面積（X）cm<sup>2</sup>を測定し、下記式により算出した。

沸水収縮率（%） =  $(400 - X) \times 100 / 400$   
 （13）通気度（cc/cm<sup>2</sup>/秒）：JIS-L-1096Aに記載の方法に準じて測定した。すなわち、20×20cmの試料片5点を作成し、フライル型試験機（大栄科学機器社製APS-360）を用いて、円筒の一端に試料片を取り付けたのち、傾斜形気圧計が水柱1.27cmの圧力を示すように吸込ポンプを調節し、

そのときの垂直形気圧計の示す圧力と、使用した空気孔の種類とから、試験機に付属の表によって空気量の値を求め、この求められた空気量の平均値を通気度（cc/cm<sup>2</sup>/秒）とした。

【0065】（実施例1）融点が171℃、MFRが4.0g/10分であるL-乳酸/D-乳酸=99/1モル%のL-乳酸/D-乳酸共重合体を用い、丸型の紡糸口金より、紡糸温度200℃、単孔吐出量1.00g/分で溶融紡糸した。次に紡出糸状を冷却空気流にて冷却した後、引き続いてエアサッカーにて3000m/minで引き取り、これを開織して移動するコンベアの捕集面上に堆積してウエブを形成した。次いでこのウエブをエンボスロールからなる部分熱圧着装置に通し、ロール温度140℃、圧着面積率14.9%、圧着点密度21.9個/cm<sup>2</sup>、線圧30kg/cmの条件にて部分的に熱圧着し、単糸纖度3.0デニールの長纖維不織布を得た。その時の纖維物性と製造条件と操業性と不織布物性および生分解性能を表1に示す。

【0066】なお、結晶サイズを測定する際に、纖維軸（c軸）方向の反射の中で（0010）面において高い面反射が得られた。また、結晶サイズを求めるそれぞれの回折ピーク位置（回折角：2θ）は、31.5°であった。

【0067】

【表1】

表 1

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5
物 性	L/D (モル比)	99/1	←	←	←	←
	Tm (°C)	171	←	←	←	←
	MFR(g/10分)	40	←	←	←	←
	複屈折率(×10 <sup>-3</sup> )	12.0	14.2	17.0	18.4	19.9
	結晶化度(wt%)	13.4	18.2	21.0	23.9	25.3
	結晶サイズ(Å)	45	64	71	74	78
	結晶配向度(%)	93.3	94.6	95.4	95.8	96.0
不織布	繊維断面	単相丸	←	←	←	←
	纺糸温度(°C)	200	←	←	←	←
	単孔吐出量(g/min)	1.00	1.33	1.67	1.83	2.00
	纺糸速度(m/分)	3000	4000	5000	5500	6000
条件	圧接温度(°C)	140	141	143	144	145
操業性	糸切れ性	○	○	○	○	○
物 性	単糸強度(d)	3.0	←	←	←	←
	目付(g/m <sup>2</sup> )	20	←	←	←	←
	引張強力(kg/5cm幅)	15	17	20	23	27
	剛軟度(g)	19	18	16	15	15
	吸縮率(%)	10.0	6.3	4.7	4.5	4.1
	生分解性	○	○	○	○	○

【0068】

【表2】

表 2

		実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
繊維	L/D (モル比)	99/1	←	←	92/8, 99/1
	Tm (℃)	171	←	←	140, 171
	MFR (g/10分)	40	←	←	30, 40
	複屈折率 ( $\times 10^{-3}$ )	17.2	13.8	—	—
	結晶化度 (wt%)	23.1	18.5	23.5	18.8
	結晶サイズ (Å)	73	72	76	71
物性	結晶配向度 (%)	95.6	95.3	—	—
	不織布 繊維断面	単相丸	←	単相三角	複合芯縮
	紡糸温度 (℃)	200	←	←	←
	単孔吐出量 (g/min)	0.83	4.67	1.83	←
	紡糸速度 (m/分)	5000	6000	5500	←
	圧接温度 (℃)	144	143	144	115
操業性	糸切れ性	○	○	○	○
	不織布 単糸纖度 (d)	1.5	7.0	3.0	←
	目付 (g/m <sup>2</sup> )	20	←	←	←
	引張強力 (kg/5cm幅)	21	25	22	23
	剛軟度 (g)	11	18	13	13
	吸縮率 (%)	4.0	4.6	4.1	4.8
物性	生分解性	○	○	○	○

(実施例2～7) 単孔吐出量、紡糸速度、圧接温度、単糸纖度、目付を、表1および表2に示すように変更した。そして、それ以外は実施例1と同様にして長纖維不織布を得た。その時の纖維物性、製造条件、操業性、不織布の物性および生分解性能を表1および表2に示す。

【0069】(実施例8) 繊維断面を三角断面にした。そして、それ以外は実施例4と同様にして長纖維不織布を得た。その時の纖維物性、製造条件、操業性、不織布の物性および生分解性能を表2に示す。

(実施例9) 離点が140℃、MFRが30 g/分であるL-乳酸/D-乳酸=9/2=8モル%のL-乳酸/D-乳酸共重合体を第1の成分とし、離点が171℃、MFRが40 g/分であるL-乳酸/D-乳酸=99/1モル%のL-乳酸/D-乳酸共重合体を第2の成分として、各成分を第1の成分/第2の成分=1/1(重量比)の割合で用いた。そして芯軸型複合断面において第1の成分を芯部にまた第2の成分を輔部に配し得る紡糸口金より、紡温200℃、単孔吐出量1.83 g/分で

溶融紡糸した。紡出糸糸は、冷却空気流にて冷却した後、引き続いてエアサッカーにて500m/分で引き取り、開織し、移動するコンベアの捕集面上に堆積することで、ウエブを形成した。次いで、このウエブをエンボスロールからなる部分熱圧着装置に通し、ロール温度115℃、圧着面積率14.9%、圧着点密度21.9個/cm<sup>2</sup>、線圧30 kg/cmの条件にて部分的に熱圧着して、単糸纖度3.0デニールの長纖維からなる目付20 g/m<sup>2</sup>の長纖維不織布を得た。その時の纖維物性と製造条件と操業性と不織布物性と生分解性能とを表2に示す。

【0070】表1および表2から明らかなように、実施例1～9で得られた長纖維不織布は、複屈折率を10×10<sup>-3</sup>～25×10<sup>-3</sup>の範囲としたことで、強度等の機械的特性が優れたものであった。また、高遠紡糸により得られた糸糸であるので結晶化度は上がったが、本発明の範囲であり、しかも非晶部も多く残存させていため、自由度に富む分子領域部分が多く残存することにな

って、圧縮剛軟度が低く、柔軟性に優れた不織布であった。また、不織布の沸水吸縮率が本発明の範囲内であったため、実用的で、しかも熱的に安定なものであった。また、これらの不織布は生分解性能についても非常に良好であり、コンポストへの埋設後に所定の期間が経過してから取り出したところ、いずれの不織布も重量減少率、形態変化が大きく、強力保持率も著しく低下していた。

表 3

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	
					未延伸糸	延伸糸
織維 物性	L/D (モル比)	99/1	←	←	←	—
	Tm (°C)	171	←	←	←	—
	MFR(g/10分)	40	←	←	←	—
	復屈折率 ( $\times 10^{-3}$ )	8.4	20.9	—	6.2	34
	結晶化度(wt%)	9.1	25.0	—	8.7	31.2
	結晶サイズ(Å)	15.5	81	—	14.2	90
不織布 製造 条件	結晶配向度(%)	63.1	96.4	—	61.8	97.0
	織維断面	単相丸	←	←	←	←
	糸糸温度 (°C)	200	←	←	←	—
	単孔吐出量(g/min)	0.33	2.33	1.83	0.82	—
	糸糸速度(m/分)	1000	7500	5500	1000	—
	圧接温度 (°C)	120	147	175	—	149
操作性	延伸倍率	—	—	—	—	2.6
	糸切れ性	○	×	○	○	—
不織布 物性	単糸強度(d)	3.0	←	←	—	3.0
	目付(g/m <sup>2</sup> )	20	←	←	—	20
	引張強力 (kg/5cm幅)	12	16	—	—	29
	剛軟度(g)	405	15	—	—	52
	収縮率(%)	43.5	3.8	—	—	2.6
	生分解性	○	○	—	—	○

表3から明らかのように、比較例1は、糸糸速度が低いので、分子配向も低く、また復屈折率が $8.4 \times 10^{-3}$ と本発明の範囲の下限である $10 \times 10^{-3}$ を下回るとともに、結晶化度も9.1%と本発明の範囲の下限である1.2%を下回ったために、不織布強力が低く、機械的特性に劣るものであった。また、沸水吸縮率が高く、熱に対する安定性にも劣り、実用的なものではなかった。

【0071】(比較例1~3) 単孔吐出量、糸糸速度、圧接温度を表3に示すように変更した。そして、それ以外は実施例1と同様にして長繊維不織布を得た。その時の繊維物性、製造条件、操作性、不織布の物性および生分解性能を表3に示す。

【0072】  
【表3】

【0073】比較例2は、糸糸速度が7500m/分と本発明の範囲の上限である6500m/分よりも高かつたため、高速気流による曳糸性に劣り、糸切れが多発して生産性に劣るものであった。比較例3は、エンボスロールによる圧接温度が175°Cと重合体の融点である171°Cよりも高かつたため、エンボスロールにウエブが融着してしまってシート化を行うことができなかつた。

た。

【0074】(実施例10) 融点が171°C、MFRが4.0 g/10分であるL-乳酸/D-乳酸=1/99モル%のL-乳酸/D-乳酸共重合体を用い、丸型の紡糸口金より、紡糸温度200°C、単孔吐出量1.83 g/分で溶融紡糸した。次に紡出糸を冷却空気流にて冷却し、その後、引き続いてエアサッカーにて5.500 m/分で引き取り、開織し、移動するコンベアの捕集面上に堆積してウエブを形成した。次いでこのウエブをエンボスロールからなる部分熱圧着装置に通し、圧接温度11.0°C、圧着面積率14.9%、圧着点密度21.9個/cm<sup>2</sup>、線圧5 kg/cmの条件下にて部分的に仮熱圧着

を施して、単糸纖度3.0デニールの長纖維からなる目付100 g/m<sup>2</sup>のウエブを形成した。

【0075】次いで、このウエブを2枚積層し、#40のレギュラーパーブのパンチを用いて、針深10 mm、パンチ密度90パンチ/cm<sup>2</sup>のニードルパンチを施した。これにより、構成長纖維間に三次元的交絡が形成されかつ板熱圧着点が一部残った長纖維不織布が得られた。その時の織維物性、製造条件、操業性、不織布の物性および生分解性能を表4に示す。

## 【0076】

【表4】

表 4

		実施例10	実施例11	実施例12	実施例13
織 繊	L/D (モル比)	99/1	←	←	99/1, 99/1
	Tm (°C)	171	←	←	171, 171
	MFR(g/10分)	40	←	←	40, 40
	複屈折率 (×10 <sup>-3</sup> )	18.4	←	←	17.2, 13.8
	結晶化度(wt%)	23.9	←	←	23.1, 18.5
	結晶サイズ (A)	74	←	←	73, 72
物 性	結晶面偏角度(%)	95.8	←	←	95.6, 95.3
	不織布	織維断面	単相丸	←	単相丸
	紡糸温度 (°C)	200	←	←	200, 200
	製 造	単孔吐出量(g/min)	1.83	←	0.83, 4.67
	紡糸速度(m/分)	5500	←	←	5000, 6000
	条件	圧接温度 (°C)	110	←	100, 100
操業性	片面の加工温度 (°C)	—	140	150	150
	糸切れ性	○	○	○	○, ○
	不織布	単糸纖度(d)	3.0	←	1.5, 1.0
	物 性	目付(g/m <sup>2</sup> )	200	←	←
	引張強力 (kg/5cm幅)	17	20	21	19
	剛軟度(g)	—	252	284	277
物 性	収縮率(%)	4.2	←	4.0	4.2
	生分解性	○	○	○	○
	通気度(cc/cm <sup>2</sup> 秒)	—	70	53	48

(実施例11) 実施例10においてニードルパンチを施すことにより得られた長纖維不織布の片面に熱処理を行った。詳細には、実施例10における三次元的交絡の施された長纖維ウエブに対し、表面温度140°Cのカレン

ダーにてそのウエブの片面のみを全面的に熱接着することで、目付200 g/m<sup>2</sup>の長纖維不織布を得た。その時の織維物性、製造条件、操業性、不織布の物性および生分解性能を表4に示す。

【0077】(実施例12)カレンダーの熱処理温度を150°Cとしたこと以外は実施例11と同様にして長纖維不織布を得た。その時の纖維物性、製造条件、操業製、不織布の物性および生分解性能を表4に示す。

(実施例13)実施例6と同様であるが目付を100g/m<sup>2</sup>、圧接温度を100°Cに変更した第1の長纖維不織布と、実施例7と同様であるが目付を100g/m<sup>2</sup>、圧接温度を100°Cに変更した第2の長纖維不織布とを積層し、実施例10と同様の条件でニードルパンチを施した。その後、実施例11と同様の条件で細デニール側の面すなわち第1の長纖維不織布の面に150°Cでカレンダー処理を施して、不織布を得た。その時の纖維物性、操業条件、操業製、不織布の物性および生分解性能を表4に示す。

【0078】表4から明らかなように、実施例10～13で得られた長纖維不織布は、いずれも優れた機械的強力を有するものであった。さらに、実施例1～13の不織布は、その片面に全面カレンダー加工を施したものであったため、優れた通気遮断性および遮水性を有するものであり、しかも生分解性能についても非常に良好であり、コンポストへの埋設後に所定の期間が経過してから取り出したところ、いずれの不織布も重合減少率、形態変化が大きく、強力保持率も著しく低下していた。

(比較例4)実施例1と同様の重合体を用いて、丸形の紡糸口より、紡糸温度200°C、單孔吐出量0.82g/分で溶融紡糸を行った。紡糸条件を冷却した後、表面速度1000m/minの巻き取りロールを介して未延伸糸とした。次に、この未延伸糸を集束し、供給ロールと巻き取りロールとの間で延伸倍率2.6倍の熱延伸を施した。そして、得られた延伸糸束を帶電開縫装置にて開

織し、移動するコンベヤに堆積してウェブを形成した。次いで、実施例1で用いたエンボス装置のロール温度を149°Cに設定してこのウェブを導入し、部分熱圧着を施して、単糸織密度3.0デニールで目付20g/m<sup>2</sup>の不織布を得た。その時の纖維物性、製造条件、操業製、不織布の物性および生分解性能を表3に示す。

【0079】この比較例4の不織布は、低速で鈎糸した糸糸を熱延伸することにより得られた不織布であったため、熱延伸処理により纖維の重合体の分子が高配向高結晶化し、かつ纖維軸方向の結晶サイズも大きいものとなつた。このため、熱的安定性と機械的特性には優れるが、構成纖維が柔軟性に劣るために、硬くて肌触りの悪い不織布であった。

#### 【0080】

【発明の効果】以上のように本発明の不織布によると、ポリ乳酸系重合体が、ポリ(D-乳酸)と、ポリ(L-乳酸)と、D-乳酸とL-乳酸との共重合体と、D-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、L-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体と、D-乳酸とL-乳酸とヒドロキシカルボン酸との共重合体との群から選ばれる融点が100°C以上の重合体、あるいはこれら融点が100°C以上の重合体のブレンド体であり、前記ポリ乳酸系重合体は、複屈折率が1.0×10<sup>-3</sup>～2.5×10<sup>-3</sup>であり、結晶化度が1.2～3.0重量%であり、纖維軸方向の結晶サイズが80Å以下であり、前記不織布は、沸水吸縮率が1.5%以下であるため、自然環境下において微生物などによる分解性を有し、しかも実用に供し得る機械的強度と優れた柔軟性とを具備したポリ乳酸系長纖維不織布を得ることができる。

---

#### フロントページの続き

(72)発明者 長岡 幸一  
大阪府大阪市中央区久太郎町4-1-3  
ユニチカ株式会社大阪本社内

Fターム(参考) 4L035 BB33 BB34 BB40 BB55 EE20  
FF05 HH10  
4L047 AA21 AA28 AB03 AB10 BA09  
CA12 CA15 CA19 CB01 CB10